

溶融塩を用いた使用済核燃料の乾式再処理に関する研究

著者	佐藤 史紀
号	54
学位授与機関	Tohoku University
学位授与番号	工博第4211号
URL	http://hdl.handle.net/10097/61547

	さ　　とう　ふみ　のり
氏　　名	佐　藤　史　紀
授　与　学　位	博士（工学）
学位授与年月日	平成21年9月9日
学位授与の根拠法規	学位規則第4条第1項
研究科，専攻の名称	東北大学大学院工学研究科（博士課程）金属フロンティア工学専攻
学　位　論　文　題　目	熔融塩を用いた使用済核燃料の乾式再処理に関する研究
指　導　教　員	東北大学教授 佐藤　譲
論　文　審　査　委　員	主査 東北大学教授 佐藤　譲　 東北大学教授 原　信義 東北大学教授 長坂　徹也　 東北大学教授 一色　実

論文内容要旨

本研究では、将来の高速炉燃料再処理の候補技術として、乾式法の一つである酸化物電解法の開発を行った。酸化物電解法は、使用溶媒（熔融塩）の耐放射線性が高い、原理的に高い除染性能を取り得ないなどの点から、将来の高速炉燃料再処理と整合した特徴を持つと考えられる。しかし、軽水炉燃料の再処理技術として既に実用化されている PUREX 法（湿式法）に比べて、現時点では技術的な成立性について、十分に見通されているとは言えなかった。そこで、本研究では、ウラン、プルトニウムおよび非放射性の FP 模擬物質を試料に用い、小規模の基礎試験を多数実施することで、酸化物電解法の技術的な成立性を実際に提示することを目的とした。

第一章では、本研究の背景として、現代社会がエネルギーの大量消費の上に成り立っていること、現実としてエネルギー資源が有限であることを述べた。その上で、このようなエネルギー問題を解決し得る選択肢の一つとして、高速増殖炉サイクルと呼ばれる概念があることを提示した。次に、この高速増殖炉サイクルの構成要素である、高速炉燃料再処理への適用が検討されている候補技術の一つとして、本研究の対象である酸化物電解法について概要を述べた。また、酸化物電解法を高速炉燃料再処理へ適用する場合に考えられる、現時点では解決されていない技術的な課題を整理した。

第二章では、前章にて指摘した技術的課題を受けて、酸化物電解法においてウランとプルトニウムを核分裂生成物（FP）より分離・回収する、MOX 電解析出の工程を対象とした検討を行った。ここでは、ウラン、プルトニウムを 100g 程度用いた基礎試験を多数実施し、得られる MOX 析出物（図 1）の性状を把握するとともに、試験条件（吹込みガス、電解条件）と結果（MOX 析出物の PuO_2 含有率、電流効率、FP 分離性能）の関係を把握した。試験の結果、FP 分離については所定の性能（除染係数：5 以上）を満足すること、析出物の PuO_2 含有率については吹込みガス組成で制御が可能であることを確認した。また、この基礎試験の結果については、電解時の熔融塩の分極特性に着目した反応解析（図 2）を行い、試験条件と結果（ PuO_2 含有率、電流効率）の関係が、熔融塩中のイオンの挙動を通してよく理解できることが分かった。

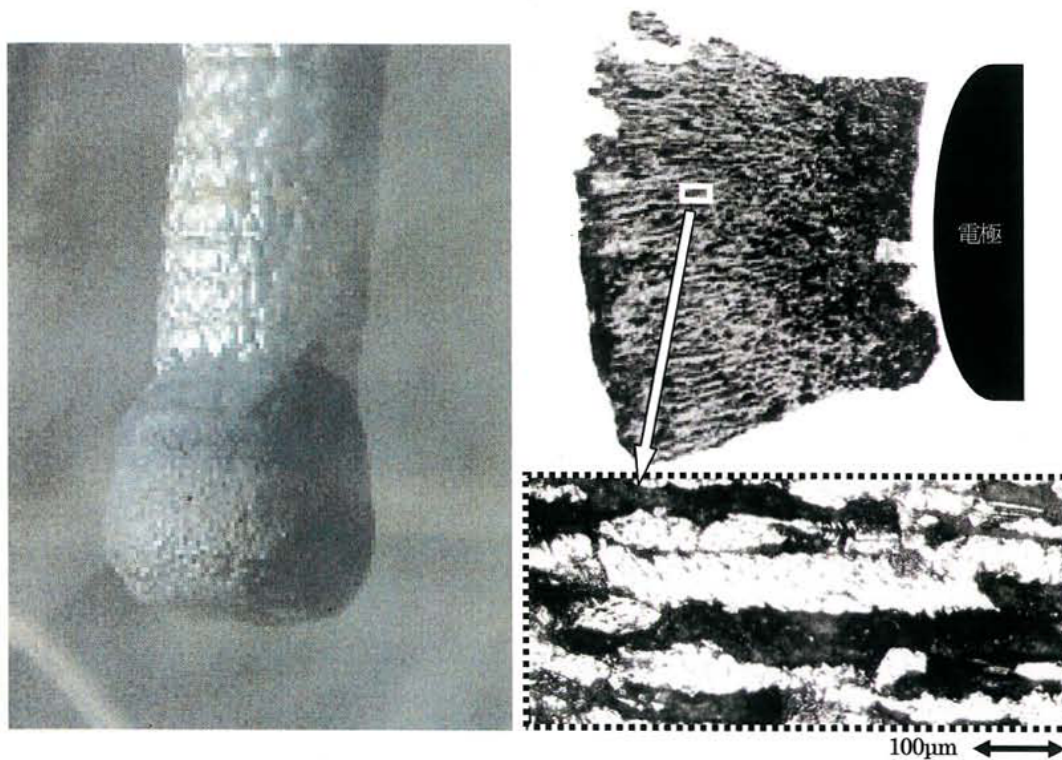


図1 MOX電解析出で回収される析出物の外観および断面

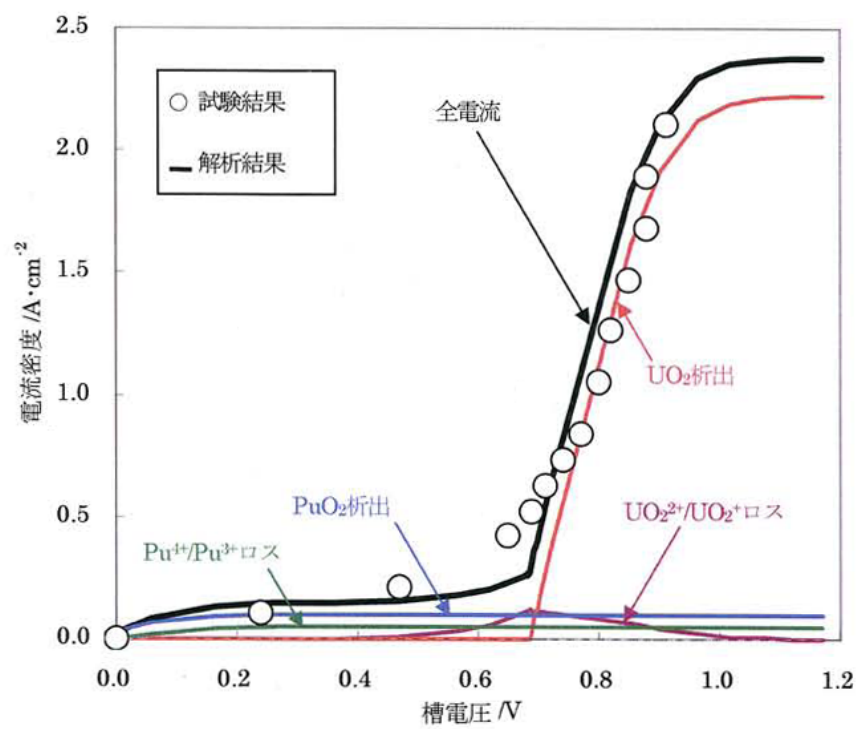


図2 MOX 電解時の溶融塩 (U, Pu 含む) の分極特性の解析結果

第三章では、酸化物電解法の技術的成立性を実証することを目的に、工程全体を対象としたプロセス研究を行った。ここでは、高速増殖炉の使用済燃料に含まれる希土類 FP（代表 5 元素）および燃料の構造材に起因する腐食生成物（2 元素）の両者を考慮した MOX 電解析出を実施し、これらの元素の混入による影響を確認した。その後、この試験結果と先述の反応解析を参考に、アクチニド（ウラン、プルトニウム、ネプツニウム、アメリシウム、キュリウム）、主要 FP（貴金属類、希土類、アルカリ土類、遷移金属類）および腐食生成物を考慮した、酸化物電解法の工程全体のプロセス試験を実施し、所定の MOX 析出物（ PuO_2 含有率：26.5%、DF：3.2 程度）が得られることを実証した（図 3）。



図3 酸化物電解法プロセス試験 析出物等の外観

第四章では、酸化物電解法にて発生する放射性廃棄物の処理技術に関する検討を行った。具体的には、酸化物電解法の主分離工程（MOX 電解析出）より排出される、FP（ ^{135}Cs 、 ^{137}Cs ）を含む溶融塩をガラス固化する際に必要な、溶融塩を酸化物へ転換する処理技術を検討した。ここでは、10g 規模の模擬試料（非放射性）を用いた基礎試験と、自由エネルギー等の基礎物性値を用いた熱力学的な解析の両面から検討を行った（図 4、図 5）。この結果、従来の手法に比べて、処理後の廃棄物量（転換後の酸化物量）を低減できることを確認した。



図4 酸化物への転換処理後の試料外観

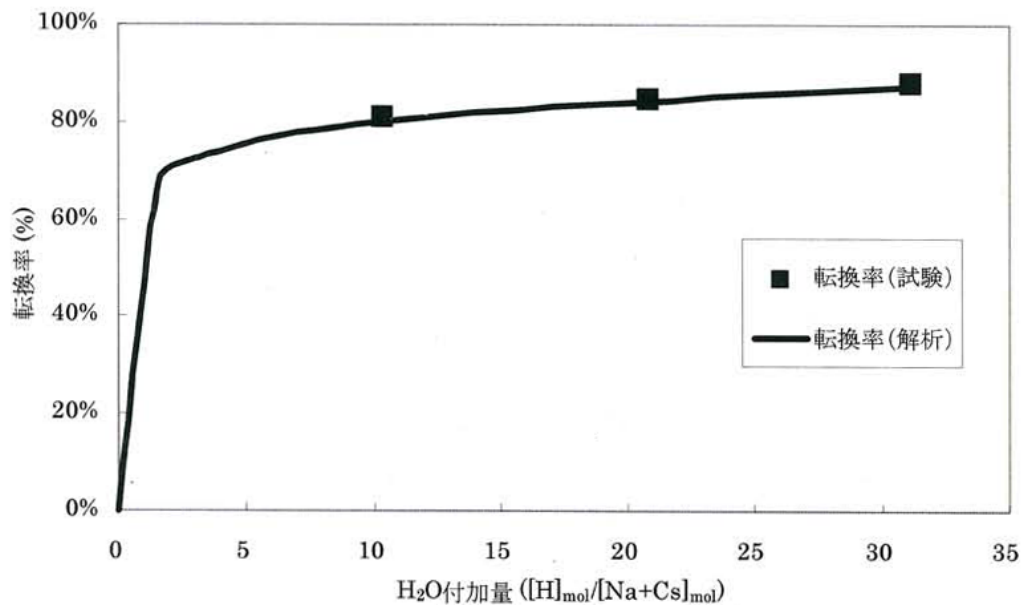


図5 塩化物の酸化物への転換挙動 (試験結果および解析結果)

本研究により、将来の高速増殖炉の使用済燃料の再処理技術として、酸化物電解法が技術的に十分成立することが実証された。今後は、本研究で実施した基礎的な研究とともに、工業技術としての実用化を視野に入れた、大処理容量の機器開発（スケールアップ）が重要になると考えられる。本研究では、実施した基礎試験については、基礎物性値と反応モデルを用いた反応解析を行い、工程中のウラン、プルトニウムなどの化学的挙動をできる限り定量的に理解するよう努めた。今後、本研究で得たこのような基礎的知見を土台として、より大きな規模での技術開発が効率的に行われることで、本論文の成果が酸化物電解法の実用化に向けた取組みに貢献することを期待する。

論文審査結果の要旨

エネルギー問題は現代社会における大きな課題であり、原子力はその中で大きな役割を果たしており、将来的には高速増殖炉の開発が目論まれているが、燃料の再処理・循環に関する技術的課題も多い。

本論文は、高速炉燃料再処理の候補技術として、乾式法である酸化物電解法の開発を行った結果を述べたものである。酸化物電解法は、熔融塩中に溶かしたウランとプルトニウムからMOX（混合酸化物）を得るものであり、使用溶媒（熔融塩）の耐放射線性が高い、原理的に高い除染性能を取り得ない等の点から、将来の高速炉燃料再処理に適した特徴を持つと考えられる。しかし、軽水炉燃料の再処理技術として既に実用化されているPUREX法（湿式法）に比べて、現時点では技術的な成立性について、十分に見通されているとは言えない。そこで、本論文の研究では、ウラン、プルトニウムおよび非放射性的FP（核分裂生成物）模擬物質を試料に用い、小規模の基礎試験を多数実施することで、酸化物電解法の技術的な成立性を提示することを目的としたものである。論文は全5章よりなる。

第一章は本研究の背景を述べた序論である。現代社会におけるエネルギー問題と高速増殖炉サイクルの概念について述べ、高速炉燃料再処理の要素技術の候補のとして、酸化物電解法の概要を述べた。また、酸化物電解法を高速炉燃料再処理へ適用する場合に考えられる、現時点では解決されていない技術的な課題を整理した。

第二章では、ウランとプルトニウムをFPより分離・回収する、MOX電解析出の工程に関する検討を、ロシアの研究所との共同研究として行った。ウラン、プルトニウムを100g程度用いた基礎試験を多数実施し、得られたMOX析出物の性状を把握するとともに、試験条件（吹込みガス、電解条件）と結果（MOX析出物のPuO₂含有率、電流効率、FP分離性能）の関係を把握した。試験の結果、FP分離については所定の性能（除染係数：5以上）を満足すること、析出物のPuO₂含有率については吹込みガスの組成で制御が可能であることを確認した。

第三章では、酸化物電解法の技術的成立性の実証を目的に、工程全体を対象としたプロセス研究を行った。ここでは、高速増殖炉の使用済燃料に含まれる希土類FP（代表5元素）および構造材料の腐食生成物（鉄、クロム）の両者を考慮したMOX電解析出を実施し、これらの元素の混入による影響を確認した。この試験結果を参考に、アクチニド（ウラン、プルトニウム、ネプツニウム、アメリシウム、キュリウム）、主要FP（貴金属類、希土類、アルカリ土類、遷移金属類）および腐食生成物を考慮した、酸化物電解法の工程全体のプロセス試験を実施し、所定のMOX析出物（PuO₂含有率：26.5%、除染係数：3.2程度）が得られることを実証した。

第四章では、酸化物電解法にて発生する放射性廃棄物の処理技術に関する検討を行った。具体的には、酸化物電解法の主分離工程（MOX電解析出）より排出される、FP（¹³⁵Cs、¹³⁷Cs）を含む熔融塩をガラス固化する際に必要な、熔融塩を酸化物へ転換する処理技術を検討した。ここでは、10g規模の模擬試料（非放射性）を用いた基礎試験と、自由エネルギー等の基礎物性値を用いた熱力学的な解析の両面から検討を行った。この結果、従来の手法に比べて、処理後の廃棄物量（転換後の酸化物量）を低減できることを確認した。

第五章は結論である。

以上、要するに本論文は将来の高速炉燃料再処理において、使用済み燃料を熔融塩に溶解させ電解析出によって混合酸化物燃料を製造する方法について、綿密な検討を行ったものであると共に、この再処理において発生する廃棄物（ガラス固化体）量の低減に関する新しい方法を開発している。

よって、本論文は博士（工学）の学位論文として合格と認める。